

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2003 年 8 月 7 日 (07.08.2003)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 03/064535 A1

(51) 国際特許分類⁷: C08L 101/00, C08K
3/40, C08L 33/04, C08F 220/20, 220/38

CO., LTD.) [JP/JP]; 〒140-0002 東京都品川区東品川
2丁目5番8号 Tokyo (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP03/00502

(22) 国際出願日: 2003 年 1 月 22 日 (22.01.2003)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願2002-17702 2002 年 1 月 25 日 (25.01.2002) JP
特願2002-17703 2002 年 1 月 25 日 (25.01.2002) JP
特願2002-48042 2002 年 2 月 25 日 (25.02.2002) JP
特願2002-135299 2002 年 5 月 10 日 (10.05.2002) JP
特願2002-135342 2002 年 5 月 10 日 (10.05.2002) JP
特願2002-135714 2002 年 5 月 10 日 (10.05.2002) JP
特願2002-273019 2002 年 9 月 19 日 (19.09.2002) JP

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 柴原 澄夫 (SHIBAHARA, Sumio) [JP/JP]; 〒104-0002 東京都品川区東品川 2丁目5番8号 住友ベークライト株式会社内 Tokyo (JP). 下邳 安雄 (SHIMOBÉ, Yasuo) [JP/JP]; 〒104-0002 東京都品川区東品川 2丁目5番8号 住友ベークライト株式会社内 Tokyo (JP). 倉本 洋光 (KURAMOTO, Hiromitsu) [JP/JP]; 〒104-0002 東京都品川区東品川 2丁目5番8号 住友ベークライト株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 森岡 博 (MORIOKA, Hiroshi); 〒530-0044 大阪府大阪市北区東天満 1丁目1番13号 広垣ビル 5階 Osaka (JP).

(81) 指定国 (国内): AF, AG, AI, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS,

[続葉有]

(54) Title: TRANSPARENT COMPOSITE COMPOSITION

(54) 発明の名称: 透明複合体組成物

(57) Abstract: A transparent composite composition which has a low coefficient of linear expansion, is excellent in transparency, heat resistance, and solvent resistance, and is usable as a glass substitute as, e.g., an optical sheet for liquid-crystal display elements and organic EL display elements. The transparent composite composition comprises a transparent resin (a) and a glass filler (b), wherein the transparent resin (a) is a copolymer obtained from at least one reactive monomer which, through crosslinking, comes to have a lower refractive index than the glass filler (b) and at least one reactive monomer which, through crosslinking, comes to have a higher refractive index than the glass filler (b).

(57) 要約:

線膨張係数が小さく、透明性、耐熱性、耐溶剤性に優れ、液晶表示素子や有機EL表示素子用の光学シートなどとしてガラスに代替可能な透明複合体組成物を提供する。

透明樹脂(a)及びガラスフィラー(b)よりなる透明複合体組成物であって、透明樹脂(a)は、架橋後の屈折率がガラスフィラー(b)よりも低い1種以上の反応性モノマーと、ガラスフィラー(b)よりも高い1種以上の反応性モノマーから得られる共重合体である透明複合体組成物を提供する。

WO 03/064535 A1



LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO,
NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU,
ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ,
SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM,
AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許
(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB,
GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SI, SK, TR), OAPI

特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML,
MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

透明複合体組成物

5 技術分野

本発明は線膨張係数が小さく、透明性、耐熱性、耐溶剤性に優れ、ガラスに代替可能な透明複合体組成物に関する。この透明複合体組成物は、例えば、液晶表示用基板、有機EL表示素子基板、カラーフィルター用基板、タッチパネル用基板、太陽電池基板などの光学シート、透明板、光学レンズ、光学素子、光導波路、
10 LED封止材等に好適に用いることができる。

背景技術

一般に、アクティブマトリックスタイプなどの液晶表示素子や有機EL表示素子用の表示素子基板、カラーフィルター基板、太陽電池用基板等には、ガラス板
15 が広く用いられている。しかしながら、ガラス板は割れ易い、曲げられない、比重が大きく軽量化に不向きであるなどの理由から、近年、その代替えとして種々のプラスチック素材が検討されている。

例えば、特開平10-77321号公報には、非晶質の熱可塑性樹脂及び活性エネルギー線硬化の可能なビス(メタ)アクリレートからなる樹脂組成物に対し、
20 活性エネルギー線を用いて硬化を行った部材が液晶基板などとして、ガラス基板に代えて用い得ると記載されている。また、特開平10-90667号公報には、脂環式構造、芳香族等の特定のビス(メタ)アクリレートを含む組成物を活性エネルギー線等により硬化成形した透明基板を用いた液晶表示素子が記載されている。

しかしながら、これら従来のガラス代替用のプラスチック材料は、いずれもガラス板に比べ線膨張係数が大きく、表示素子用基板、特にアクティブマトリックス表示素子基板に用いると、製造工程において反りやアルミ配線の断線などの不
25

具合を生じる可能性があり、これらの用途への使用は困難である。このように、表示素子基板、特にアクティブマトリックス表示素子用基板に要求される、透明性、耐溶剤性、耐熱性等を満足しつつ、線膨張係数の小さなプラスチック素材が求められている。

- 5 線膨張係数を低減するためには、従来、樹脂にガラスパウダーやガラス繊維などの無機フィラーを配合する材料の複合化も種々行われている。しかしながら、これら樹脂と無機フィラーとの複合材では、基板の透明性が損なわれることが多い。これは、無機フィラーの屈折率と樹脂の屈折率とが異なるため、樹脂中を透過する光が乱屈折することが主な原因である。
- 10 このような問題を解決するため、スチレンーメタクリレート共重合体の組成を調整して屈折率をガラス繊維に一致させる方法、あるいはアクリル樹脂とスチレンーアクリロニトリル共重合体とをブレンドして屈折率を調整する方法、さらにはN-置換マレイミドーオレフィン系共重合体の組成を調整することにより屈折率を調整する方法など、様々な方法が提案されている(特開昭54-24993
- 15 号公報、特公平6-94523号公報、特許第3216179号公報など)。しかしながら、これらの材料をガラス基板に代えてアクティブマトリックス表示素子基板などに用いると耐熱性や耐溶剤性が不十分である。

- 20 本発明の目的は線膨張係数が小さく、透明性、耐熱性、耐溶剤性に優れ、ガラスに代替可能な透明複合体組成物を提供することにある。本発明の透明複合体組成物は、アクティブマトリックスタイプを含む液晶表示素子用基板、有機EL表示素子基板、カラーフィルター用基板、タッチパネル用基板、太陽電池基板などの光学シート、透明板、光学レンズ、光学素子、光導波路、LED封止材などの用途に適する。

- 25 発明の開示

本発明者らは、かかる課題を解決すべく鋭意検討した。その結果、透明樹脂(

a)とガラスフィラー(b)からなり、透明樹脂(a)は、架橋後の屈折率がガラスフィラー(b)よりも低い1種以上の反応性モノマーと、ガラスフィラー(b)よりも高い1種以上の反応性モノマーとを架橋して得られる共重合体であって、(a)と(b)との屈折率差が0.01以下である透明複合体組成物は、波長550nmにおける光線透過率が80%以上と透明性が高く、しかも低線膨張係数であって、耐熱性、耐溶剤性にも優れるとの知見を得て本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明は透明樹脂(a)及びガラスフィラー(b)からなり、波長550nmにおける光線透過率が80%以上である透明複合体組成物を提供するものである。

本発明の好ましい透明複合体組成物は、脂環式構造を有するアクリレート(a1)と、含イオウアクリレート及びフルオレン骨格を有するアクリレートから選ばれた少なくとも1種のアクリレート(a2)との架橋により得られる透明樹脂(a)とガラスフィラー(b)からなる樹脂組成物である。

発明の詳細

以下に、本発明をさらに具体的に説明する。

本発明の透明複合体組成物に用いる透明樹脂(a)は可視光線に対し高い透過性を有し、厚さ200 μ mのシートにしたとき、波長550nmの光線の透過率が好ましくは80%以上、より好ましくは85%以上、最も好ましくは90%以上である。特に、表示素子用基板とする場合には85%以上であるのが好ましい。

前記透明樹脂(a)のガラス転移温度は、好ましくは150℃以上であり、より好ましくは180℃以上、さらに好ましくは200℃以上である。樹脂のガラス転移温度がこれより低いと、特に、アクティブマトリックス型の表示素子基板に用いた場合、TFT素子形成工程で変形やうねりが生じる恐れがある。

このような透明樹脂(a)の例としては、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、シクロオレフィンポリマーなどの熱可塑

性樹脂、アクリレートなどの反応性モノマーを活性エネルギー線で架橋させた樹脂などが挙げられる。これらのうち、耐溶剤性に優れていることからアクリレートなどの反応性モノマーを活性エネルギー線および／または熱によって架橋した樹脂が好ましい。

- 5 かかる反応性モノマーは、熱や活性エネルギー線による架橋が可能であればよい。透明性や耐熱性の面から2つ以上の官能基を有する(メタ)アクリレートが好ましい。これら樹脂は単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

10 また、本発明の透明複合体組成物を表示基板用プラスチック基板として用いる場合、波長550nmにおける光線透過率80%以上が必要であり、さらに好ましくは85%以上であり、最も好ましくは88%以上である。波長550nmにおける光線透過率が80%より低いと表示性能が充分でない。

15 かかる複合体において、波長550nmにおける光線透過率を80%以上にするには、(1)透明樹脂とガラスフィラーの屈折率を一致させるか、あるいは(2)光の波長以下の微細なガラスフィラーを用いる方法などが採用し得るが、材料の入手の容易さから屈折率を調整する方法が好ましい。

前記透明樹脂(a)とガラスフィラー(b)との屈折率差は、優れた透明性を得るため0.01以下である必要があり、0.005以下であるのがより好ましい。かかる屈折率差が0.01より大きいと得られる複合体組成物の透明性が劣る。

20 透明樹脂(a)とガラスフィラー(b)との屈折率差を0.01以下にするには、
①透明樹脂(a)の屈折率に合ったガラスフィラー(b)を選択する、②ガラスフィラー(b)の屈折率に合った透明樹脂(a)を選択する、③ガラスフィラー(b)よりも屈折率の高い樹脂とガラスフィラー(b)よりも屈折率の低い樹脂とを組み合わせ、
25 て樹脂の屈折率をガラスフィラー(b)に一致させる方法などが採用し得る。

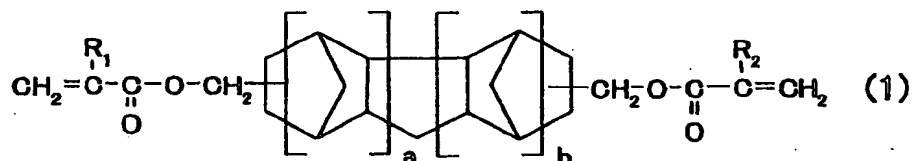
しかしながら、単独の樹脂によりガラスフィラーとの屈折率が合う組み合わせは限られていることから、屈折率の異なる2種以上の樹脂を組み合わせるか、架橋後の屈折率の異なる2種以上の反応性モノマーを用いて屈折率を調整するのが

好ましい。また、屈折率の異なるポリマーで相容可能なものは限定されるため、屈折率の異なる2種以上の反応性モノマーの量比を調整して重合を行い屈折率を制御するのがより好ましい。かかる方法によれば、樹脂の屈折率をEガラスなどの汎用的なガラスフィラーの屈折率に調整することができる。

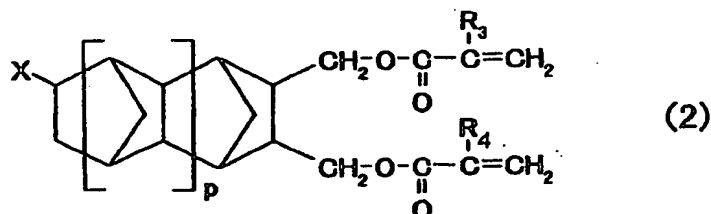
- 5 樹脂とガラスフィラーとの屈折率差を0.01以下に調整するには、ガラスフィラーよりも屈折率の高い少なくとも1種の反応性モノマーと、ガラスフィラーよりも屈折率の低い少なくとも1種の反応性モノマーとを用いるのが好ましい。

(a1) 低屈折率モノマー

- 10 ガラスフィラーよりも屈折率の低い反応性モノマーとしては、脂環式構造や脂肪族鎖を含む各種の(メタ)アクリレートを用いることができ、特に透明性や耐熱性の面から脂環式構造を有する(メタ)アクリレートが好ましい。本発明の複合組成物に用いられる脂環式構造を有する(メタ)アクリレートとしては、脂環式構造を含み2つ以上の官能基を有する(メタ)アクリレートであればよく、反応性、耐熱性や透明性の点から下式(1)及び(2)から選ばれた少なくとも1種以上の(メ
- 15 タ)アクリレートが好ましい。

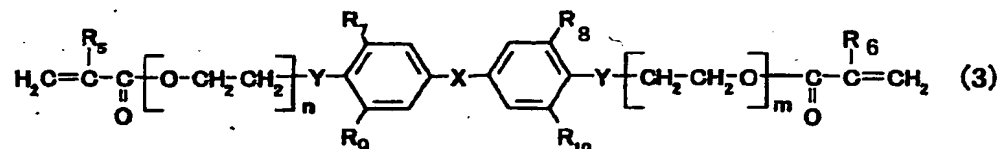


(式中、 R_1 及び R_2 は各々独立に水素原子又はメチル基を示す。aは1又は2を示し、bは0又は1を示す。)



- 20 (式中、Xは水素原子、 $-\text{CH}_3$ 、 $-\text{CH}_2\text{OH}$ 、 NH_2 、

以上の官能基を有する(メタ)アクリレートであればよく、耐熱性や透明性の点から下式(3)に示す(メタ)アクリレートが好ましい。

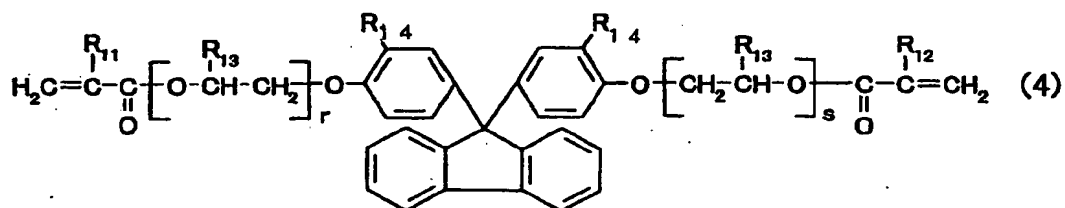


- 5 (式中、Xはイオウ又は SO_2 を示し、Yは酸素又はイオウを示す。 $\text{R}_5 \sim \text{R}_{10}$ は各々独立に水素原子又はメチル基を示す。 n および m は0～2である。)

式(3)で示される(メタ)アクリレートの中でも、反応性、耐熱性や取り扱い安さからXがイオウ、Yが酸素、 $\text{R}_5 \sim \text{R}_{10}$ がすべて水素、 n 及び m がともに1であるビス[4-(アクリロイロキシエトキシ)フェニル]スルフィドが最も好ましい。

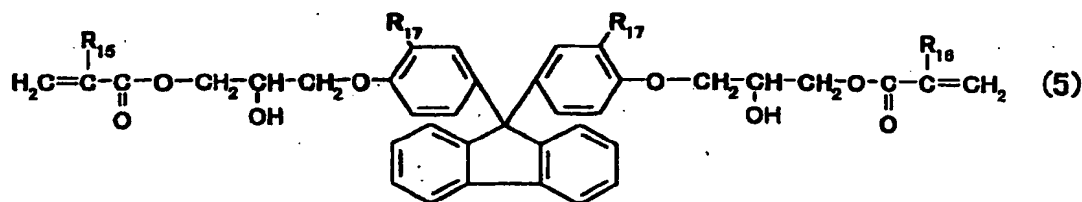
10 フルオレン骨格を有する(メタ)アクリレート

本発明で用いられるフルオレン骨格を有する(メタ)アクリレートとしては、フルオレン骨格を含み2つ以上の官能基を有する(メタ)アクリレートであれば特に限定されないが、耐熱性や透明性の点から下記の式(4)および(5)より選ばれた少なくとも1種以上の(メタ)アクリレートが好ましい。

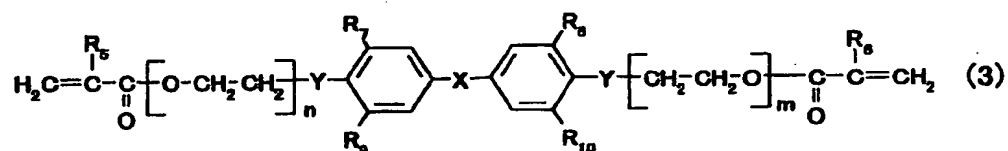


15

(式中、 $\text{R}_{11} \sim \text{R}_{14}$ は各々独立に水素原子又はメチル基を示す。 r および s は0～2である。)



以上の官能基を有する(メタ)アクリレートであればよく、耐熱性や透明性の点から下式(3)に示す(メタ)アクリレートが好ましい。

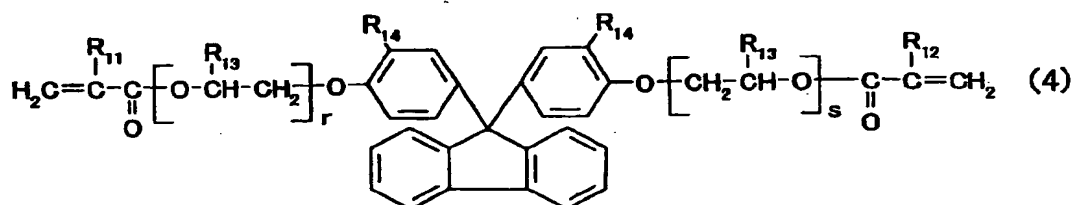


(式中、Xはイオウ又は SO_2 を示し、Yは酸素又はイオウを示す。 $\text{R}_5 \sim \text{R}_{10}$ は各々独立に水素原子又はメチル基を示す。 n および m は0～2である。)

式(3)で示される(メタ)アクリレートの中でも、反応性、耐熱性や取り扱い安さからXがイオウ、Yが酸素、 $\text{R}_5 \sim \text{R}_{10}$ がすべて水素、 n 及び m がともに1であるビス[4-(アクリロイロキシエトキシ)フェニル]スルフィドが最も好ましい。

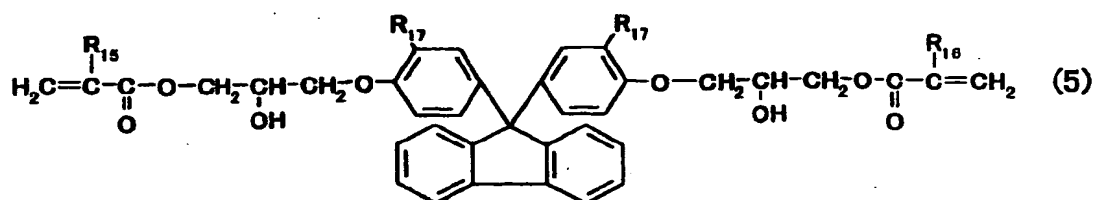
10 フルオレン骨格を有する(メタ)アクリレート

本発明で用いられるフルオレン骨格を有する(メタ)アクリレートとしては、フルオレン骨格を含み2つ以上の官能基を有する(メタ)アクリレートであれば特に限定されないが、耐熱性や透明性の点から下記の式(4)および(5)より選ばれた少なくとも1種以上の(メタ)アクリレートが好ましい。



15

(式中、 $\text{R}_{11} \sim \text{R}_{14}$ は各々独立に水素原子又はメチル基を示す。 r および s は0～2である。)



(式中、 $R_{15} \sim R_{17}$ は各々独立に水素原子又はメチル基を示す。)

これらの中でも式(4)において $R_{11} \sim R_{14}$ がすべて水素で、 r 及び s が1であるビス[4-(アクリロイロキシエトキシ)フェニル]フルオレンが最も好ましい。

- 5 これら低屈折率モノマーと高屈折率モノマーは、目的とする屈折率に応じて適宜の配合割合で混合して架橋を行うことができ、透明樹脂の屈折率を、これと組み合わせるガラスフィラーの屈折率に合わせることができる。

本発明で用いられる2つ以上の官能基を有する(メタ)アクリレートには柔軟性付与などのため、所望の特性を損なうことのない範囲で、単官能(メタ)アクリレート
10 を併用してもよい。この場合、樹脂成分全体の屈折率がガラスフィラーの屈折率に適合するよう配合量を調整する。

(b) ガラスフィラー

本発明の透明複合体組成物に配合するガラスフィラー(b)の屈折率は特に限定されるものではないが、組み合わせる樹脂の屈折率の調整が容易なように1.5
15 0～1.57の範囲にあるのが好ましい。特にガラスフィラーの屈折率が1.50～1.54である場合は、ガラスのアッベ数に近い樹脂が選択でき好ましい。樹脂とガラスとのアッベ数が近いと広い波長領域において両者の屈折率が一致し、広い波長領域で高い光線透過率が得られる。

本発明で用いるガラスフィラー(b)としては、ガラス繊維、ガラスクロスやガラス不織布などのガラス繊維布、ガラスビーズ、ガラスフレーク、ガラスパウダー、
20 ミルドガラスなどが挙げられる。中でも線膨張係数の低減効果が高いことから、ガラス繊維、ガラスクロス、ガラス不織布が好ましく、ガラスクロスが最も好ましい。

ガラスの種類としては、Eガラス、Cガラス、Aガラス、Sガラス、Dガラス、NEガラス、Tガラス、クォーツ、低誘導率ガラス、高誘導率ガラスなどがあ
25 げられ、中でもアルカリ金属などのイオン性不純物が少なく、入手が容易なEガ

ラス、Sガラス、Tガラス、NEガラスが好ましい。

ガラスフィラーとしてガラスクロスや不織布を用いる場合、フィラメントの織りかたに限定はなく、平織り、ななこ織り、朱子織り、綾織りなどが適用でき、中でも平織りが好ましい。ガラスクロスの厚みは、通常、30～200 μm であるのが好ましく、より好ましくは40～150 μm である。ガラスクロスやガラス不織布などのガラス繊維布は1枚だけでもよく、複数枚を重ねて用いてもよい。

(透明複合体組成物)

透明複合体組成物におけるガラスフィラーの配合量は、1～90重量%が好ましく、より好ましくは10～80重量%、さらに好ましくは30～70重量%である。ガラスフィラーの配合量がこれより少ないと、複合化による低線膨張化の効果が認められず、一方、これより多いと成形外観が低下する傾向にある。

透明複合体組成物は、ガラス繊維布などのガラスフィラーと樹脂とが密着しているほど、プラスチック基板などにした場合の透明性が向上するため、ガラスフィラー表面をシランカップリング剤などの公知の表面処理剤で処理することが好ましい。具体的には、反応性モノマーとして2つ以上の官能基を持つ(メタ)アクリレートを用いた場合にはアクリルシランで処理することが好ましい。

(他の配合成分)

本発明の複合体組成物中には、必要に応じ、透明性、耐溶剤性、耐熱性等の特性を損なわない範囲で、熱可塑性又は熱硬化性のオリゴマーやポリマーを併用してよい。この場合、吸水率を低減させるなどの目的で、脂環式構造やカルド骨格を有するオリゴマーやポリマーを使用することが好ましい。これら熱可塑性または熱硬化性のオリゴマーやポリマーを併用する場合は、全体の屈折率がガラスフィラーの屈折率に合うように組成比を調整すればよい。

また、本発明のプラスチック基板など複合体組成物中には、必要に応じて、透明性、耐溶剤性、耐熱性等の特性を損なわない範囲で、少量の酸化防止剤、紫外

線吸収剤、染顔料、他の無機フィラー等の充填剤等を配合してもよい。

(製造法)

複合体組成物の成形方法には制限がなく、例えば、透明樹脂として反応性モノマーを用いる場合には、①反応性モノマーとガラスフィラーとを直接混合し、必要な型に注型したのち架橋させる方法、②反応性モノマーを溶剤に溶解しガラスフィラーを分散させキャストした後、架橋させる方法、さらに③反応性モノマーをガラス繊維布に含浸させたのち架橋させ、必要に応じてシート化する方法などが挙げられる。

前記の反応性モノマーを架橋させるには、活性エネルギー線により硬化させる方法、熱をかけて熱重合させる方法等があり、これらを併用してもよい。反応性モノマー、好ましくは屈折率の異なる2種以上の反応性モノマーとして2つ以上の官能基を有する(メタ)アクリレートを用いる場合には、活性エネルギー線により硬化させる方法が好ましく、反応の完結、リターデーション値を低くする、線膨張係数を低減する等の目的で、活性エネルギー線による硬化及び/又は熱をかけて熱重合させる工程の後に、さらに高温での熱処理を併用することが好ましい。使用する活性エネルギー線としては、紫外線が好ましい。紫外線の光源としては、例えば、メタルハライドタイプ、高圧水銀灯ランプ等が挙げられる。

(重合開始剤)

反応性モノマーを紫外線等の活性エネルギー線により架橋、硬化させるには、樹脂組成物中にラジカルを発生する光重合開始剤を加えるのが好ましい。かかる光重合開始剤としては、例えばベンゾフェノン、ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインプロピルエーテル、ジエトキシアセトフェノン、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、2,6-ジメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキシド、2,4,6-トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキシドが挙げられる。これらの光重合開始剤は2種以上を併用しても良い。

光重合開始剤の複合体組成物における含有量は、適度に硬化させる量であれ

ばよく、2つ以上の官能基を有する(メタ)アクリレートの合計100重量部に対し、0.01~2重量部が好ましく、さらに好ましくは、0.02~1重量部であり、最も好ましくは、0.1~0.5重量部である。光重合開始剤の添加量が多すぎると、重合が急激に進行し、複屈折の増大、着色、硬化時の割れ等の問題が発生する。また、少なすぎると組成物を十分に硬化させることができず、架橋後に型に付着して取り外せないなどの問題が発生する恐れがある。

活性エネルギー線による硬化及び/又は熱重合による架橋後に高温で熱処理する場合は、その熱処理工程の中に、線膨張係数を低減する等の目的で、窒素雰囲気下又は真空状態で、250~300℃、1~24時間の熱処理工程を加えるのが好ましい。

本発明の透明複合体組成物を、光学用途、すなわち透明板、光学レンズ、液晶表示素子用プラスチック基板、カラーフィルター用基板、有機EL表示素子用プラスチック基板、太陽電池基板、タッチパネル、光学素子、光導波路、LED封止材等として用いる場合は、30~150℃の平均線膨張係数が50ppm以下であることが好ましく、より好ましくは40ppm以下である。特にシート状の透明複合体組成物として、アクティブマトリックス表示素子基板に用いる場合は、前記平均線膨張係数が30ppm以下であることが好ましく、より好ましくは20ppm以下である。前記値を越えると、製造工程において反りやアルミ配線の断線などの問題が生じる恐れがあるが、線膨張係数が前記の値以下であると従来のガラス基板を用いた場合の設備を大きく変更せずにTF T形成工程を実施できる。

本発明の複合体組成物を、液晶表示素子用プラスチック基板、カラーフィルター用基板、有機EL表示素子用プラスチック基板、太陽電池基板、タッチパネル等として用いる場合、基板の厚さは50~2000 μ mであることが好ましく、50~1000 μ mであるのがより好ましい。基板の厚さがこの範囲内にあれば、平坦性に優れ、ガラス基板と比較して、基板の軽量化を図ることができる。

本発明の複合体組成物を光学シートとして用いる場合、平滑性向上のために両面に樹脂のコート層を設けてもよい。コートする樹脂としては、優れた透明性、耐熱性、耐薬品性を有していることが好ましく、具体的には多官能アクリレートやエポキシ樹脂などをあげることができる。コート層の厚みは0.1～50 μm が好ましく、0.5～30 μm であるのがより好ましい。

本発明の光学シートを特に表示素子用プラスチック基板として用いる場合には、必要に応じ水蒸気や酸素に対するガスバリア層や透明電極層を設けてもよい。

実施例

以下に本発明を実施例によりさらに詳細に説明するが、これらは本発明の範囲を限定するものではない。

[実施例1]

Eガラス系のガラスクロス(厚さ50 μm 、屈折率1.560、ユニチカクロス製E06B(#1080))を、焼きだしをして有機物を除去した後、アクリロイロキシプロピルトリエトキシシラン(アクリルシラン)で処理した。このガラスクロスに、ジシクロペンタジエニルジアクリレート(式1)(東亜合成(株)製M-203、架橋後の屈折率1.527)58重量部、ビス[4-(アクリロイロキシエトキシ)フェニル]スルフィド(式3)(東亜合成(株)試作品TO-2066、架橋後の屈折率1.606)42重量部、及び光重合開始剤(1-ヒドロキシ-シクロヘキシル-フェニル-ケトン(チバスペシャリティケミカル製、イルガキュア184)0.5重量部とからなる樹脂組成物(架橋後の屈折率1.560)を含浸し脱泡を行った。得られたクロス(樹脂/クロス/樹脂/クロス/樹脂)というように積層し、離型処理したガラス板に挟み込んで、両面から約500 mJ/cm^2 のUV光を照射して硬化させた。さらに真空オーブン中、約100℃にて3時間加熱後、さらに約250℃にて3時間加熱し、シート状のプラスチック基板(厚さ0.2mm)を得た。該基板のガラスフィラー含有率は30重量%であった。

[実施例 2]

樹脂組成物として、ノルボルナンジメチロールジアクリレート(式2)(東亜合成(株)試作品、架橋後の屈折率1.520)53重量部、ビス[4-(アクリロイロキシエトキシ)フェニル]スルフィド(式3)(東亜合成(株)試作品TO-2066
5、架橋後の屈折率1.606)47重量部、及び光重合開始剤0.5重量部とからなる樹脂組成物(架橋後の屈折率1.560)を調製し、これを実施例1と同様のガラスクロスに含浸し、脱泡した。このガラスクロスを実施例1と同様に積層、UV光照射及び加熱の処理を施してシート状のプラスチック基板(厚さ0.2mm)を得た。該基板のガラスフィラー含有率は30重量%であった。

[実施例 3]

ガラスクロスとして、Eガラス系ガラスクロス(厚さ100 μ m、屈折率1.560、ユニチカクロス製E10A(#2117))を焼きだしして有機物を除去した後、アクリロイロキシプロピルトリエトキシシラン(アクリルシラン)で処理したものを用いた。このクロスに実施例1と同様の組成の樹脂組成物を含浸し、脱
15泡した。このガラスクロスを離型処理したガラス板に挟み込んで、両面から約500mJ/cm²のUV光を照射して硬化させた。さらに真空オープン中で、約100℃で3時間加熱後、さらに約250℃で3時間加熱し、厚さ0.1mmのシート状のプラスチック基板を得た。該基板のガラスフィラー含有率は50重量%であった。

[実施例 4]

ガラスクロスとして、実施例3と同様に処理した厚さ100 μ mのEガラス系ガラスクロスを準備した。このガラスクロスに実施例2と同様の組成の樹脂組成物を含浸し、脱泡した。このガラスクロスを実施例3と同様にガラス板に挟み込んで、UV光を照射して硬化させ、加熱してシート状のプラスチック基板(厚さ
250.1mm)を得た。該基板のガラスフィラー含有率は50重量%であった。

[実施例 5]

ガラスクロスとして、Sガラス系ガラスクロス(厚さ100 μ m、屈折率1.530、ユニチカクロス製(#2117タイプ))を用い、実施例1と同様の処理を行った。樹脂組成物として、ジシクロペンタジエニルジアクリレート(式1)(東亜合成(株)製M-203、架橋後の屈折率1.527)92重量部、ビス[4-(アクリロキシエトキシ)フェニル]スルフィド(式3)(東亜合成(株)試作品TO-2066、架橋後の屈折率1.606)8重量部、及び光重合開始剤0.5重量部からなる樹脂組成物(架橋後の屈折率1.533)を用いた。前記ガラスクロス
5 を樹脂組成物に含浸、脱泡した後、離型処理したガラス板に挟み込んで、両面から約10 J/cm²のUV光を照射して硬化させた。さらに真空オープン中で250℃で3時間加熱し、シート状のプラスチック基板(厚さ0.1 mm)を得た。
10 該基板のガラスフィラー含有率は50重量%であった。

[実施例6]

樹脂組成物として、ジシクロペンタジエニルジアクリレート(式1)(東亜合成(株)製M-203、架橋後の屈折率1.527)96重量部、ビス[4-(アクリロキシエトキシ)フェニル]フルオレン(式4)(東亜合成(株)試作品TO-2065、架橋後の屈折率1.624)4重量部、光重合開始剤0.5重量部からなる樹脂組成物(架橋後の屈折率1.531)を調製した。この樹脂組成物を実施例5と同様にして調製したSガラス系ガラスクロスに含浸し、脱泡した。得られたガラスクロス
15 を離型処理したガラス板に挟み込んで、実施例5と同条件にてUV光を照射して硬化させ、加熱処理して、シート状のプラスチック基板(厚さ0.1 mm)を得た。該基板のガラスフィラー含有率は50重量%であった。
20

[実施例7]

ガラスクロスとして、50 μ mのTガラス系ガラスクロス(日東紡製、屈折率1.530)を焼きだしして有機物を除去した後、アクリロキシプロピルトリエトキシシラン(アクリルシラン)で処理したものを調製した。このガラスクロス
25 に実施例6と同組成の樹脂組成物を含浸し、脱泡した。このガラスクロス2枚を

重ねて離型処理したガラス板に挟み込んで、実施例 5 と同条件にて UV 光を照射し、硬化、加熱処理を行い、シート状のプラスチック基板(厚さ 0.1 mm)を得た。該基板のガラスフィラー含有率は 50 重量%であった。

〔実施例 8〕

- 5 ガラスクロスとして、NE ガラス系ガラスクロス(厚さ 100 μ m、屈折率 1.510、日東紡製(#2116 タイプ))を用い、実施例 1 と同様の処理を行った。樹脂組成物として、ノルボルナンジメチロールジアクリレート(式 2)(東亜合成(株)試作品、架橋後の屈折率 1.520)90 重量部、ヒドロキシピバルアルデヒドとトリメチロールプロパンのアセタール化合物のジアクリレート(式 6)
- 10 (日本化薬(株)製 KAYARAD R-604、架橋後の屈折率 1.496)10 重量部、及び光重合開始剤 0.5 重量部からなる樹脂組成物(架橋後の屈折率 1.512)を用いた。前記ガラスクロスに樹脂組成物を含浸、脱泡した後、離型処理したガラス板に挟み込んで、実施例 5 と同条件にて UV 光を照射し、硬化、加熱処理を行い、シート状のプラスチック基板(厚さ 0.1 mm)を得た。該基板のガラス
- 15 フィラー含有率は 50 重量%であった。

〔比較例 1〕

- ジシクロペンタジエニルジアクリレート(式 1)(東亜合成(株)製 M-203、架橋後の屈折率 1.527)100 重量部に光重合開始剤 0.5 重量部添加し、離型処理したガラス板に挟み込んで、両面から約 500 mJ/cm² の UV 光を照
- 20 射して硬化させた。さらに真空オープン中で、約 100℃にて 3 時間加熱後、さらに約 250℃にて 3 時間加熱し、シート状のプラスチック基板(0.2 mm)を得た。

〔比較例 2〕

- E ガラス系ガラスクロス(厚さ 50 μ m、屈折率 1.560、ユニチカクロス製 E06B(#1080))を、焼きだしをして有機物を除去した後、アクリロイロキシプロピルトリエトキシシラン(アクリルシラン)で処理した。このガラスクロ
- 25

- 5 スに、ジシクロペンタジエニルジアクリレート(東亜合成(株)製M-203、架橋後の屈折率1.527)100重量部に対して光重合開始剤0.5重量部を加えた樹脂組成物を含浸して脱泡を行った。得られたガラスクロス(樹脂/クロス/樹脂/クロス/樹脂)というように積層し、離型処理したガラス板に挟み込んで、両面から約500mJ/cm²のUV光を照射して硬化させた。さらに真空オープン中で、約100℃にて3時間加熱後、さらに約250℃にて3時間加熱し、シート状のプラスチック基板(厚さ0.2mm)を得た。該基板のガラスフィラー含有率は30重量%であった。

[比較例3]

- 10 Eガラス系ガラスクロス(厚さ100μm、屈折率1.560、ユニチカクロス製E10A(#2117))を焼きだしして有機物を除去した後、アクリロイロキシプロピルトリエトキシシラン(アクリルシラン)で処理した。このクロスに前記ジシクロペンタジエニルジアクリレート100重量部、及び光重合開始剤0.5重量部からなる樹脂組成物(架橋後の屈折率1.527)を含浸し、脱泡した。
- 15 この樹脂を含浸したクロス(樹脂/クロス/樹脂)を離型処理したガラス板に挟み込んで、両面から約500mJ/cm²のUV光を照射して硬化させた。さらに真空オープン中で、約100℃で3時間加熱後、さらに約250℃で3時間加熱し、シート状のプラスチック基板(厚さ0.1mm)を得た。該基板のガラスフィラー含有率は50重量%であった。

20 (評価方法)

前記の実施例、比較例にて作製したシート状のプラスチック基板(光学シート)について、下記の評価方法により各種の特性を測定した。

(a)平均線膨張係数

セイコー電子(株)製TMA/SS120C型熱応力歪測定装置を用いて、窒素

の雰囲気下、1分間に5℃の割合で温度を30℃から250℃まで上昇させた後、一旦0℃まで冷却し、再び1分間に5℃の割合で温度を上昇させて30℃～150℃の時の値を測定して求めた。

測定は、独自に設計した石英引張チャック(材質：石英，線膨張係数0.5 p p m)を用いた。一般に使われているインコネル製のチャックは、それ自体の線膨張が高いことやサンプルの支持形態に不具合があり、100 μ mを超える厚いシートに適用すると線膨張係数が圧縮モードで測定した結果よりも大きめに出たり、測定ばらつきが大きくなる問題があった。したがって、石英引張チャックを独自に設計し、それを用いて線膨張係数を測定することにした。この引張チャックを用いることにより、圧縮モードで測定した場合とほぼ同様の値で測定できることを確認している。

(b)耐熱性(T g)

セイコー電子(株)製DMS-210型粘弾性測定装置で測定し、1 Hzでの $\tan \delta$ の最大値をガラス転移温度(T g)とした。

15 (c)耐溶剤性

60℃のジメチルスルホキシド(DMSO)溶液に試料を浸漬して60分間放置。試料を取り出した後、目視にて外観を観察した。完全に変形、変色を伴わず、侵食されないもののみ○、他は×とした。

(d)耐配向剤性

20 スピンコーター上に試料を設置。その表面にCRD-8201(住友ベークライト製)を滴下した後 2500 rpmでスピンコートを実施した。180℃60分乾燥処理後、目視にて外観を観察した。

(e)耐液晶性

25 基板の表面にメルク社製ZIL-4792を1滴滴下する。80℃のオープン内に投入して60分放置する。試料を取り出した後、目視にて外観を観察した。

(f)光線透過率

分光光度計U3200(日立製作所製)で400nm及び550nmの光線透過率を測定した。

(g)屈折率

- 5 アタゴ社製アッペ屈折率計DR-M2を用いて、25℃で波長589nmの屈折率を測定した。

(h)反り、撓み等の変形の評価

- 10 基板上に、アルミニウムをスパッタリングにより3000Åの厚さで形成させ、フォトリソグラフ法により、幅100μm、長さ30mmの模擬配線パターンを形成させ、パターン両端5mmの部分に金2000Åをスパッタリングして5mm²の抵抗値測定用電極を形成させた。つづいて、10mm²の開口部を有するメタルマスクを配線パターンの中央部に配設し、SiN(2000Å)/アモルファスSi(500Å)/SiN(2000Å)の各層を連続CVDにより形成させた。さらに、180℃のオープンに1時間入れ、常温に戻した後、目視にて外観を観察した。
- 15 これら評価方法により、前記実施例、比較例にて得られた試料を評価した結果をつぎの表1～3に示す。

[表 1]

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4
脂環式アクリレート(式 1)	58	—	58	—
脂環式アクリレート(式 2)	—	53	—	53
含イオウアクリレート(式 3)	42	47	42	47
フルオレンアクリレート(式 4)	—	—	—	—
光重合開始剤	0.5	0.5	0.5	0.5
Eガラス系ガラスクロス	50 μ 2枚	50 μ 2枚	100 μ 1枚	100 μ 1枚
樹脂の屈折率	1.560	1.560	1.560	1.560
ガラスクロスの屈折率	1.560	1.560	1.560	1.560
基板厚み (μ m)	200	200	100	100
平均線膨張係数(ppm)	20	19	16	17
耐熱性: T_g ($^{\circ}$ C)	210	215	210	215
耐配向剤性	○	○	○	○
耐液晶性	○	○	○	○
耐溶剤性	○	○	○	○
光線透過率(%) 400nm	67	65	70	68
光線透過率(%) 550nm	87	88	89	89
反り、撓み	○	○	○	○

[表 2]

	実施例-5	実施例-6	実施例-7	実施例-8
脂環式アクリレート(式1)	92	96	96	—
脂環式アクリレート(式2)	—	—	—	90
含イオウアクリレート(式3)	8	—	—	—
フルオレンアクリレート(式4)	—	4	4	—
環状エーテルアクリレート(式6)	—	—	—	10
光重合開始剤	0.5	0.5	0.5	0.5
Sガラス系ガラスクロス	100 μ 1枚	100 μ 1枚	—	—
Tガラス系ガラスクロス	—	—	50 μ 2枚	—
NEガラス系ガラスクロス	—	—	—	100 μ 1枚
樹脂の屈折率	1.533	1.531	1.531	1.512
ガラスクロスの屈折率	1.530	1.530	1.530	1.510
基板厚み (μ m)	100	100	100	100
平均線膨張係数(ppm)	11	10	10	13
耐熱性:T _g (°C)	>250	>250	>250	>250
耐溶剤性	○	○	○	○
耐配向剤性	○	○	○	○
耐液晶性	○	○	○	○
光線透過率(%)400nm	85	88	88	88
光線透過率(%)550nm	89	89	89	89
反り、撓み	○	○	○	○

[表 3]

	比較例 1	比較例 2	比較例 3
脂環式アクリレート(式 1)	100	100	100
脂環式アクリレート(式 2)	—	—	—
含イオウアクリレート(式 3)	—	—	—
フルオレンアクリレート(式 4)	—	—	—
光重合開始剤	0.5	0.5	0.5
Eガラス系ガラスクロス	—	50 μ 2枚	100 μ 1枚
樹脂の屈折率	1.527	1.527	1.527
ガラスクロスの屈折率	—	1.560	1.560
基板厚み (μ m)	200	200	100
平均線膨張係数(ppm)	72	19	16
耐熱性: T _g (°C)	250	250	250
耐溶剤性	○	○	○
耐配向剤性	○	○	○
耐液晶性	○	○	○
光線透過率(%)400nm	88	6	10
光線透過率(%)550nm	90	25	35
反り、撓み	×	○	○

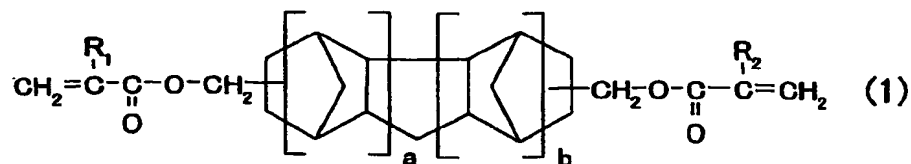
5 産業上の利用可能性

本発明の透明複合体組成物は、低線膨張係数で透明性、耐熱性、耐溶剤性等に優れるため、例えば、透明板、光学レンズ、液晶表示素子用プラスチック基板、カラーフィルター用基板、有機EL表示素子用プラスチック基板、太陽電池基板、タッチパネル、光学素子、光導波路、LED封止材等に好適に利用でき、特に

10 アクティブマトリックスタイプの液晶表示素子基板や有機EL素子基板用の光学シートとして好ましい。

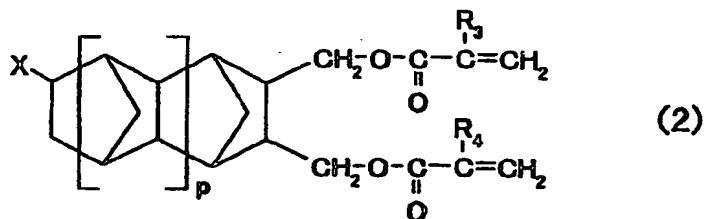
請 求 の 範 囲

1. 透明樹脂(a)及びガラスフィラー(b)からなり、波長550nmにおける光線透過率が80%以上である透明複合体組成物。
- 5 2. 透明樹脂(a)及びガラスフィラー(b)よりなる透明複合体組成物であって、透明樹脂(a)は、架橋後の屈折率がガラスフィラー(b)よりも低い1種以上の反応性モノマーと、ガラスフィラー(b)よりも高い1種以上の反応性モノマーとから得られる共重合体である透明複合体組成物。
3. 反応性モノマーの少なくとも1種が2つ以上の官能基を有する(メタ)アクリレートである請求項2の透明複合体。
- 10 4. 透明樹脂(a)のガラス転移温度が150℃以上である請求項1～3の透明複合体組成物。
5. 透明樹脂(a)とガラスフィラーとの屈折率差が0.01以下である請求項1～4の透明複合体組成物。
- 15 6. 透明樹脂(a)が、脂環式構造を有するアクリレート(a1)と、含イオウアクリレート及びフルオレン骨格を有するアクリレートから選ばれた少なくとも1種のアクリレート(a2)とを架橋して得られる共重合体である請求項1～5いずれかの透明複合体組成物。
7. 脂環式構造を有する(メタ)アクリレートが下式(1)及び(2)より選ばれた少なくとも1種以上の(メタ)アクリレートである請求項6の透明複合体組成物。
- 20

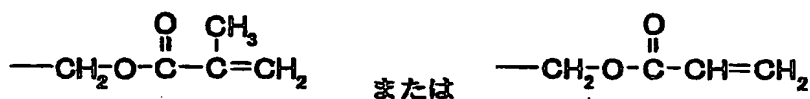


(式中、 R_1 及び R_2 は各々独立に水素原子又はメチル基を示し、 a は1又は

2を、bは0又は1を示す。)

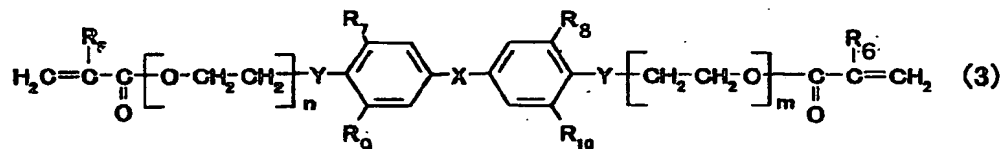


(式中、Xは水素原子、メチル基、 $-\text{CH}_2\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ 、



5 を示し、 R_3 及び R_4 は水素原子またはメチル基を、Pは0または1を示す。)

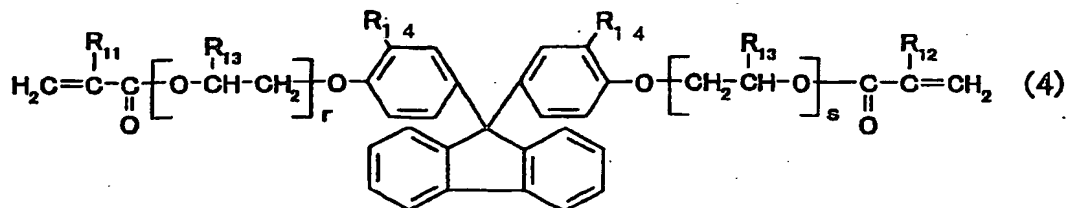
8. 含イオウ(メタ)アクリレートが下式(3)で表される(メタ)アクリレートである請求項6の透明複合体組成物。



10 (式中、XはS又は SO_2 を示し、YはO又はSを示す。 $\text{R}_5 \sim \text{R}_{10}$ は各々独立に水素又はメチル基を示す。nおよびmは0～2である。)

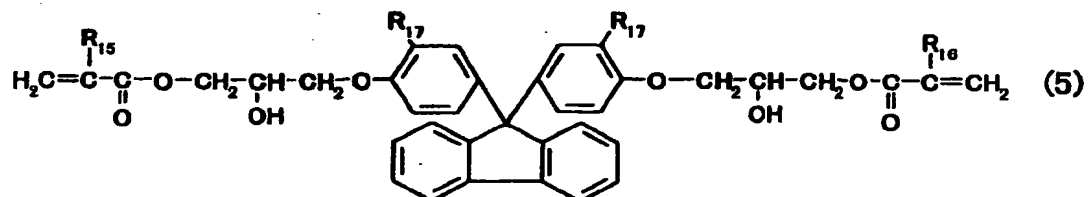
9. フルオレン骨格を有する(メタ)アクリレートが下式(4)及び(5)より選ばれた少なくとも1種以上の(メタ)アクリレートである請求項6の透明複合体組成物。

15 【化5】



(式中、 $\text{R}_{11} \sim \text{R}_{14}$ は各々独立に水素又はメチル基を示し、rおよびsは0

～2を示す。)



(式中、 $R_{15} \sim R_{17}$ は各々独立に水素又はメチル基を示す。)

10. 透明樹脂(a)が、活性エネルギー線および/または熱による、屈折率の異なる2種以上の反応性モノマーの架橋にて得られたものである請求項1～9いずれかの透明複合体組成物。
11. ガラスフィラー(b)が、ガラス繊維布である請求項1～10いずれかの透明複合体組成物。
12. ガラスフィラー(b)の屈折率が1.50～1.57である請求項1～11いずれかの透明複合体組成物。
13. 30～150℃における平均線膨張係数が50ppm以下である請求項1～12いずれかの透明複合体組成物。
14. 厚さ50～2000μmのシートである請求項1～13いずれかの透明複合体組成物。
15. 透明複合体組成物が、光学シート、表示素子用プラスチック基板又はアクティブマトリックス表示素子用基板である請求項1～14いずれかの透明複合体組成物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/00502

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTERInt.Cl⁷ C08L101/00, C08K3/40, C08L33/04, C08F220/20, C08F220/38

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C08L1/00-101/16, C08K3/00-13/08, C08F20/10-20/38,
C08F220/10-220/38

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2001-261367 A (NGK Insulators, Ltd.), 26 September, 2001 (26.09.01), Claims; examples (Family: none)	1, 4, 5, 12-15
X	JP 2000-63653 A (Teijin Kasei Kabushiki Kaisha), 29 February, 2000 (29.02.00), Claims; examples (Family: none)	1, 4, 5, 12-15
X	JP 9-95607 A (GE Plastics Japan Ltd.), 08 April, 1997 (08.04.97), Claims; examples (Family: none)	1, 4, 5, 12-15

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
25 April, 2003 (25.04.03)Date of mailing of the international search report
13 May, 2003 (13.05.03)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/00502

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 4-202308 A (Mitsubishi Rayon Co., Ltd.), 23 July, 1992 (23.07.92), Claims; examples (Family: none)	1-15
P,A	JP 2002-356566 A (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.), 13 December, 2002 (13.12.02), Claims; examples (Family: none)	1-15
P,A	JP 2002-241509 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 28 August, 2002 (28.08.02), Claims; examples (Family: none)	1-15
A	JP 9-152510 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 10 June, 1997 (10.06.97), Claims; examples (Family: none)	1-15
A	JP 11-507087 A (Sorlar International Horldings Ltd.), 22 June, 1999 (22.06.99), Claims; examples & WO 96/38486 A1 & EP 828766 A1 & US 5977276 A & US 6166158 A	1-15
A	JP 2000-7741 A (Kyo-eisha Kagaku Kabushiki Kaisha), 11 January, 2000 (11.01.00), Claims; examples (Family: none)	1-15

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. C08L101/00, C08K3/40, C08L33/04, C08F220/20,
C08F220/38

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. C08L1/00-101/16, C08K3/00-13/08,
C08F20/10-20/38, C08F220/10-220/38

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)
WPI/L

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2001-261367 A (日本碍子株式会社) 2001.09.26, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1, 4, 5, 12-15
X	JP 2000-63653 A (帝人化成株式会社) 2000.02.29, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1, 4, 5, 12-15

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

25.04.03

国際調査報告の発送日

13.05.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

藤本 保

4J

9552

電話番号 03-3581-1101 内線 3495

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 9-95607 A (日本ジーイープラスチックス株式会社) 1997. 04. 08, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1, 4, 5, 12-15
A	JP 4-202308 A (三菱レイヨン株式会社) 1992. 07. 23, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-15
PA	JP 2002-356566 A (住友ベークライト株式会社) 2002. 12. 13, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-15
PA	JP 2002-241509 A (三菱化学株式会社) 200 2. 08. 28, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-15
A	JP 9-152510 A (三菱化学株式会社) 1997. 0 6. 10, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-15
A	JP 11-507087 A (ソーラー・インターナショナル・ ホールディングズ・リミテッド) 1999. 06. 22, 特許請求の範囲、実施例 & WO 96/38486 A1 & EP 828766 A1 & US 5977276 A & US 6166158 A	1-15
A	JP 2000-7741 A (共栄社化学株式会社) 2000. 01. 11, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-15